

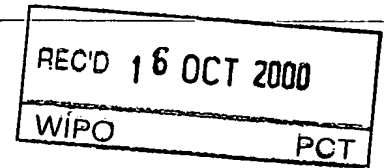
CZ 94090 DE

PCT/EP 00/08427

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND #2

**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



EP 00/08427

4

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

Aktenzeichen: 199 49 318.9

Anmeldetag: 13. Oktober 1999

Anmelder/Inhaber: Menzolit Fibron GmbH, Bretten/DE

Bezeichnung: Kohlenstofffaserverstärktes SMC für multiaxial ver-
stärkte Bauteile

Priorität: 11.09.1999 DE 199 43 442.5

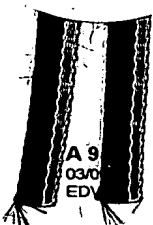
IPC: B 29 C, B 29 B, B 32 B

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ur-
sprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 12. September 2000
Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident
Im Auftrag

Ebert



Kohlenstoffaserverstärktes SMC für multiaxial verstärkte Bauteile

Die Erfindung betrifft ein SMC zur Herstellung faserverstärkter duroplastischer Bauteile, ein diesbezügliches Verfahren zur Herstellung sowie ein aus diesem SMC hergestelltes Bauteil.

- 5 SMC steht für „Sheet Moulding Compound“ und ist die englische Bezeichnung für eine Harzmatte nach DIN 16913. Mit SMC wird im allgemeinen eine fließfähige Harzmatte basierend auf ungesättigtem Polyesterharz oder Vinylesterharz und Wirrfaserverteilung in der Mattenebene bezeichnet. Als Verstärkungsfasern werden üblicherweise Glasfasern verwendet. Eine typische SMC-Rezeptur besteht zu ca.
- 10 30 % aus Polymer, ca. 30 % aus Füllstoff und ca. 30 % Glasfasern, der Rest setzt sich aus Zuschlagstoffen zusammen, wie zum Beispiel Farbpigmenten, Härter, Dispergierhilfsmittel, Füllstoffen und ähnlichen Stoffen. Hergestellt wird SMC in der Regel folgendermaßen: Die Harzmatrix wird auf zwei Trägerfolien aufgetragen. Diese Trägerfolien werden durch eine SMC-Maschine gezogen und transportieren
- 15 dabei die Harzmatrix, auf welche die Verstärkungsfasern aufgerieselt oder aufgelegt werden. Nachdem die Verstärkungsfasern aufgebracht sind, werden beide Folien zusammengepreßt, so daß eine Art Sandwich entsteht. Dieses Sandwich wird durch eine Imprägnierstrecke transportiert, die durch Druck- und Walkbewegungen dafür sorgt, daß die Fasern gleichmäßig mit der Harzmatrix benetzt werden. Am
- 20 Ende der Maschine wird es auf Rollen gewickelt. Von entscheidender Bedeutung ist ein Reifeprozess, der auf chemische und/oder physikalische Weise eingeleitet werden kann. Nach diesem Reifeprozess kann das SMC weiterverarbeitet werden. Nach Abziehen der Trägerfolien wird das SMC üblicherweise in beheizten Stahlwerkzeugen zu Formteilen verarbeitet bzw. verpreßt.

Der Vorteil von SMC ist die hohe Fließfähigkeit die bewirkt, daß die Pressform nur zu 30 bis 50 % abgedeckt werden muß. Die Festigkeit und Steifigkeit kann je nach Verstärkungsfasernanteil in einem weiten Spektrum variiert werden.

Als Alternative ist es bekannt, ein Gewebe zur Verstärkung in die Harzmatrix einzulegen. Nachteilig ist hieran, daß zwar die Festigkeit wesentlich erhöht ist, jedoch kaum Fließfähigkeit vorhanden ist. Die Pressform muß vollständig bedeckt werden, was einen exakten Zuschnitt erfordert, wodurch viel Abfall anfällt.

Weiterhin ist SMC mit einer Glasfaserverstärkung sowohl aus geschnittenen Fasern (Wirrfasern) als auch aus unidirektionalen Fasern (UD-Fasern) bekannt. Die UD-Fasern bewirken erhöhte Festigkeits- und Steifigkeitseigenschaften in einer axialen Richtung und die Wirrfasern bestimmen die Querfestigkeit. Vorzugsweise wird dieses SMC nur für trägerartige Bauteile wie zum Beispiel Stoßfängerträger eingesetzt. Flächenförmige Bauteile sind wegen der starken Verzugsneigung der Bauteile nicht herstellbar.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zu Grunde, ein SMC zur Herstellung faserverstärkter duroplastischer Bauteile nach dem Oberbegriff so weiterzubilden, daß in flächenförmigen dünnwandigen Bauteilen eine hohe Festigkeit und Steifigkeit in multiaxialer Richtung erreicht wird. Basis dafür ist ein SMC mit asymmetrischer Faserstruktur, bestehend aus einer Wirrfaserseite und einer UD-Faserseite.

~~Erfindungsgemäß wird diese Aufgabe dadurch gelöst, daß mehrere Lagen SMC mit UD-Fasern mit voneinander verschiedener axialen Ausrichtung im Bauteil angeordnet sind. Da die UD-Fasern für die Festigkeits- und Steifigkeitseigenschaften maßgeblich sind, sind diese Eigenschaften nicht nur in einer axialen Richtung, sondern in verschiedenen Richtungen gegeben. Aufgrund der hohen Festigkeit und Steifigkeit können leichte bzw. Bauteile mit dünner Wandstruktur hergestellt werden.~~

Um einen mehrlagigen SMC-Aufbau bei angestrebten Bauteilwanddicken von ca. 1,2 mm und großen SMC-Zuschnittsabmessungen herstellen zu können, muß das SMC-Flächengewicht kleiner 1000 gr/m^2 sein.

5 Solch niedrige SMC-Flächengewichte waren bisher technisch nicht herstellbar und aus Festigkeits- und Steifigkeitsgesichtspunkten auch nicht sinnvoll. Erst mit einer UD-Kohlenstoffaserverstärkung und den daraus resultierenden Festigkeits- und Steifigkeitseigenschaften für eine multiaxiale Verstärkung im Bauteil, wurde die Entwicklung eines solchen SMC interessant.

10 Im Vergleich zu den üblichen Verfahrenstechniken für die Herstellung von Bauteilen aus Faserverbundwerkstoffen mit Kohlenstoffasern (resin-transver-moulding, Prepregverarbeitung im Preß- oder Autoklavverfahren) ergeben sich für das der Erfindung zugrunde liegende SMC folgende Vorteile:

- Einfache Zuschnittsgeometrien, da trotz UD-Faserverstärkung das SMC fließfähig ist
- 15 - Kein SMC-Verschnitt, der entsorgt oder recycelt werden muß
- Kein Beschneiden der Formteile, deshalb kein Abfall
- Kurze Zykluszeiten der Bauteilherstellung, deshalb für die Großserienherstellung geeignet

Bevorzugt für das entwickelte asymmetrisch verstärkte SMC sind eine Kombination
20 ~~von Wirrfasern aus Glas- oder Kohlenstoffasern mit UD-Kohlenstoffasern.~~

Das der Erfindung zugrunde liegende SMC bedeckt die Preßform 60 - 95 %. Um die Fließfähigkeit der UD-Kohlenstoffasern in UD-Richtung zu erzeugen, werden die endlosen UD-Fasern auf eine endliche Länge geschnitten. Die endlichen UD-

Faserlängen können zwischen 25 mm und 650 mm liegen. Die Enden der endlichen UD-Fasern liegen versetzt zueinander, um Schwachstellen im SMC zu vermeiden.

In bevorzugter Ausführungsform sind die UD-Faserlagen Kohlenstoffaserkabel, z. B. nach dem „heavy tow“-Verfahren hergestellt. Vorteilhaft werden hierzu „heavy tow“ Kohlenstofffasern größer 49 K verwendet. Alternativ können auch Kohlenstofffaserbreitbandkabel nach dem „heavy tow“-Verfahren in den Breiten von 10 mm bis 500 mm verwendet werden.

Zur Kontrolle der UD-Faserrichtungen im fertigen Formteil durch Röntgenuntersuchung sind bevorzugt einzelne Glasfaserfäden in Richtung der UD-Fasern als Kontrastfasern in die Matrix eingebracht.

Zur Verbesserung der Faserbenetzung, der Fließfähigkeit und zum Ausgleich von Schwindungen wird vorteilhafterweise für die Wirrfasern und die UD-Fasern eine unterschiedliche Harzmatrix verwendet.

Es ist vorteilhaft der Harzmatrix leitfähige Zusätze einzubringen, um die elektrische Leitfähigkeit soweit zu verbessern, daß ohne eines zusätzlichen leitfähigen Primers auf dem Bauteil eine elektrostatische (ESTA) Lackierung möglich ist.

Der Oberflächenwiderstand sollte zwischen 10 bis $10^6 \Omega$ bei 5 V und der Durchgangswiderstand kleiner als $10^5 \Omega/\text{cm}$ liegen.

Ein erfindungsgemäßes Verfahren zur Herstellung eines faserverstärkten SMC mit den obengenannten Eigenschaften zeichnet sich dadurch aus, daß SMC-Matten mit Wirrfasern und einer einzigen Lage UD-Fasern hergestellt werden und daß mehrere derartige SMC-Matten vor der Weiterverarbeitung zum Formteil durch Schichtung zu einem Stapel mit multiaxialer Ausrichtung der UD-Fasern angeord-

net werden. Dies hat den großen Vorteil, daß eine vorhandene Anlage zur Herstellung eines SMC bestehend aus Wirrfasern und UD-Fasern nicht verändert werden muß. Die multiaxiale Ausrichtung kommt durch die Schichtung einzelner SMC-Matten zu einem Stapel zustande, wobei die SMC-Matten zueinander verdreht geschichtet werden.

In bevorzugter Ausführungsform sind alle verwendeten UD-Faserlagen in 0°-Richtung ausgerichtet und es wird eine beliebige Anzahl von Faserlagen verwendet.

In alternativer bevorzugter Ausführungsform sind mindestens vier UD-Faserlagen in folgender Ausrichtung angeordnet:

0°, 90°, 90°, 0° oder 0°, 90°, 0°, 90°.

Die Winkelangaben bedeuten, daß die nächste darunterliegende UD-Faserlage um diesen Winkel verdreht zur ersten Lage angeordnet ist.

Dies bedeutet, daß die erste Lage in 0° und die zweite Lage in 90° zur ersten Lage ausgerichtet ist.

In alternativer bevorzugter Ausführungsform sind mindestens sechs UD-Faserlagen angeordnet. Dabei haben die UD-Faserlagen zweckmäßigerweise folgende Ausrichtung:

0°, 90°; + 45°, - 45°, 90°, 0°.

In alternativer Ausführungsform sind acht UD-Faserlagen angeordnet mit folgender Ausrichtung:

0°, 90°, + 45°, - 45°, + 45°, - 45°, 90°, 0°.

Für größere Wanddicken kann der Materialaufbau aus 4 oder 6 oder 8 Lagen in der angegebenen Reihenfolge mehrfach übereinander gelegt werden.

Eine bevorzugte Ausführungsform des Verfahrens sieht vor, daß die SMC-Matten (mit einer UD-Faserlage) in Streifen geschnitten und auf Spulen aufgewickelt werden, daß die Streifen für die Bauteilherstellung abgelängt und in beliebiger Lage angeordnet werden und die einzelnen Zuschnittslagen auf einem Drehteller in beliebiger Winkellage zueinander zu einem Stapel geschichtet werden. Dies hat den Vorteil, daß auch bei geometrisch schwierigen Zuschnittsformen kein Abfall anfällt.

Als letzter Arbeitgang wird der Stapel entweder in das Werkzeug (Presse) zur Herstellung des Bauteils eingelegt und das Bauteil gepreßt oder aber als Zwischenstufe zur Fixierung durch Vorpressen vorgeformt, wobei die Presse zum Vorformen eine Negativform des Werkzeuges zum Herstellen des Bauteils ist.

Bevorzugt werden die Streifen auf Spulen mit einem Kerndurchmesser von größer gleich 200 mm und einem Außendurchmesser von größer gleich 500 mm aufgewickelt.

Das erfindungsgemäße SMC und die erfindungsgemäße Verarbeitungstechnologie ist vielseitig einsetzbar. Es dient bevorzugt zur Herstellung von faserverstärkten Bauteilen, insbesondere für die Kraftfahrzeugindustrie.

Je nach Harzmatrix können Bauteile für die verschiedensten Anwendungen hergestellt werden. Innen- und Außenteile miteinander verbunden ergeben hohe Festigkeiten und Steifigkeiten in z. B. Karosserieelementen.

Bei Verwendung einer schwindungsfreien Harzmatrix können Automobilaußenteile
5 mit einer „class A“-Oberfläche hergestellt werden, die wegen ihrer elektrischen Leitfähigkeit wie Blechteile elektrostatisch lackiert werden können.

Weitere Merkmale der Erfindung ergeben sich aus den Figuren, die nachfolgend beschrieben sind.

Es zeigen:

Fig. 1 schematisch eine Anlage zum Herstellen von SMC mit einer UD-Faserlage,

Fig. 2 schematisch eine Vorrichtung zum Herstellen der Zuschnittslagen und des multiaxialen SMC,

5 Fig. 3 schematisch das Herstellen der Zuschnittslagen und das Schichten zu einem Stapel auf einem Drehteller,

Fig. 4 das Pressen zu einem Formteil,

Fig. 5 beispielhaft ein geschichteter Stapel einzelner UD-Faserlagen,

10 Fig. 6 ein fertiges Formteil mit schematischer Anordnung der ursprünglichen UD-Faserlagen und

Fig. 7 die multiaxiale Ausrichtung der UD-Faserlagen.

Fig. 1 zeigt eine Maschine oder Anlage zum Herstellen von SMC mit einer einzigen UD-Faserlage. Auf eine Folie 1 wird eine Harzpaste oder Harzmatrix 2 über einen

15 Rake 3 aufgebracht. Anschließend werden Wirrfasern 4 aufgestreut. Diese Wirrfasern 4 sind Glasfasern oder Kohlenstofffasern, die als Endlosfasern 5 einer Schneidvorrichtung 6 zugeführt werden und von dieser in kleine ca. 6 - 50 mm lange Stücke geschnitten werden. Anschließend werden unidirektionale UD-Fasern 7 in Laufrichtung der Bahn aufgelegt. Diese UD-Fasern 7 sind bevorzugt Kohlenstofffasern. Zum Abschluß wird eine zweite Folie 1 wieder mit einer Harzmatrix 2
20

über ein Rakel 3 beschichtet und auf die erste Folie gelegt, so daß sich eine Art Sandwich ergibt. Nicht gezeigt ist das anschließende Imprägnieren in einer Kammer zwischen Waben oder Waben und Bindern, die in einer Wärmekammer angeordnet sein können. Dies so hergestellte SMC wird erfindungsgemäß online oder
5 offline in Streifen von ca. 4 - 20 cm Breite geschnitten und auf Rollen aufgewickelt.

Fig. 2 zeigt schematisch das weitere Vorgehen. Die eben genannten Rollen 8 werden in Reihe versetzt angeordnet. Beispielhaft sind hier nur zwei Rollen 8 gezeichnet. Neben den Rollen 8 ist jeweils ein Folienabzug 9 angeordnet. Zum Herstellen des multiaxialen SMC wird das SMC mit einem Schneidwerkzeug 10 abgelängt und
10 verschoben, so daß sich ohne Verschnitt eine nahezu beliebig geformte Zuschnittslage 11 ergibt. Mit den Bezugszeichen 12 sind die einzelnen Streifen nach dem Schneiden und vor dem Verschieben bezeichnet. Das Verschieben geschieht auf einer Fördervorrichtung 13. Anschließend werden die einzelnen Zuschnittslagen 11
entweder auf einem Drehteller 14 zu einem Stapel geschichtet mit unterschiedlicher
15 axialer Ausrichtung der UD-Fasern oder aber direkt durch Vorpressen fixiert. Die Presse 15 zum Vorformen ist vorteilhaft eine Negativform des Werkzeugs zum Herstellen des Formteils.

Fig. 3 zeigt schematisch das Herstellen der Zuschnittslagen 11 und das Schichten zu einem Stapel auf einem Drehteller 14. Die einzelnen Rollen 8 werden geschnit-
20 ten, je nach Erfordernis, und zu einer Zuschnittslage 11 verschoben und anschließend auf einem Drehteller 14 gestapelt. Es fällt dabei kein Abfall bzw. Verschnitt an.

Fig. 4 zeigt das Pressen zu einem Formteil 16. In einer Vorformpresse 17 wurde ein Stapel an geschichteten Zuschnittslagen vorgeformt. Anschließend wird diese
25 Vorformpresse 17 mitsamt dem Vorformteil in die Presse 18 eingelegt, das Vorformteil zurückgefahren und das Formteil 16 gepreßt.

Fig. 5 zeigt beispielhaft einen geschichteten Stapel 19 einzelner Zuschnittslagen 11. Der Stapel 19 besteht in diesem Beispiel aus sechs Lagen mit einer Orientierung der UD-Faserlagen von 0° , 90° , $+45^\circ$, -45° , 90° , 0° .

Fig. 6 zeigt ein fertiges Bauteil (Formteil) 16 mit schematischer Anordnung der einzelnen UD-Faserlagen. Gut zu erkennen ist die Schichtung der einzelnen Zuschnittslagen 11.

Fig. 7 zeigt die multiaxiale Ausrichtung der UD-Faserlagen in 0° , 90° , $+45^\circ$, -45° , 90° , 0° .

Patentansprüche

1. SMC (Sheet Moulding Compound) zur Herstellung faserverstärkter duroplastischer Bauteile bestehend aus einer Harzmatrix (2) mit einer Faserverstärkung, mit unidirektionalen Fasern (UD-Fasern) (7), die in einer axialen Ausrichtung angeordnet sind, und vorteilhafterweise zusätzlich mit geschnittenen Fasern (Wirrfasern) (4), die ungerichtet in der Harzmatrix (2) angeordnet sind, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere Lagen SMC mit UD-Fasern (7) mit voneinander verschiedener axialen Ausrichtung im Bauteil angeordnet sind.
2. SMC nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Wirrfasern (4) Glasfasern und die UD-Fasern (7) Kohlenstofffasern sind oder umgekehrt.
3. SMC nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die UD-Fasern (7) und die Wirrfasern (4) Kohlenstofffasern sind.
4. SMC nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die UD-Fasern (7) Kohlenstofffasern sind und keine Wirrfasern (4) verwendet werden.
5. SMC nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die UD-Fasern (7) „heavy tow“ - Kohlenstofffaserkabel oder „heavy tow“ - Kohlenstofffaserbreitbandkabel sind.
6. SMC nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die UD-Fasern (7) durch Einschnitte im fertigen SMC zur Erzeugung von Fließfähigkeit in Faserrichtung verkürzt werden.

7. SMC nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Schnittbreite des Werkzeugs zum Schneiden der UD-Faserlagen zwischen 2 mm und 15 mm liegt.
8. SMC nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß für die Wirrfasern (4) und die UD-Fasern (7) eine unterschiedliche Harzmatrix (2) verwendet wird.
9. SMC nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß zur Kontrolle der UD-Faserrichtungen einzelne UD-Glasfasern in Richtung der UD-Kohlenstofffasern (7) als Kontrastfasern in die Matrix (2) eingebracht sind.
10. SMC nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das SMC-Flächengewicht kleiner 1000 gramm/m² ist.
11. SMC nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Harzmatrix (2) elektrisch leitfähige Zusätze enthält.
12. Verfahren zur Herstellung eines faserverstärkten SMC nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet,
- daß SMC-Matten mit einer einzigen Lage UD-Fasern (7) hergestellt werden und
- daß mehrere SMC-Matten vor der Weiterverarbeitung zum Bauteil (16) durch Schichtung zu einem Stapel (19) mit multiaxialer Ausrichtung der UD-Fasern (7) angeordnet werden.

13. Verfahren nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, daß alle verwendeten UD-Faserlagen (7) in 0°-Richtung ausgerichtet sind und eine beliebige Anzahl von Faserlagen (7) verwendet wird.
14. Verfahren nach Anspruch 12 oder 13, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens vier UD-Faserlagen (7) angeordnet sind.
15. Verfahren nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß die vier UD-Faserlagen (7) folgende Ausrichtung haben
- 0°, 90°, 90°, 0° oder 0°, 90°, 0°, 90°.
16. Verfahren nach Anspruch 12 oder 13, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens sechs UD-Faserlagen (7) angeordnet sind.
17. Verfahren nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß die sechs UD-Faserlagen (7) folgende Ausrichtung haben
- 0°, 90°; + 45°, - 45°, 90°, 0°.
18. Verfahren nach Anspruch 12 oder 13, dadurch gekennzeichnet, daß acht UD-Faserlagen (7) angeordnet sind.
19. Verfahren nach Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, daß die acht UD-Faserlagen (7) folgende Ausrichtung haben
- 0°, 90°; + 45°, - 45°, + 45°, - 45°, 90°, 0°.

20. Verfahren nach einem der Ansprüche 12 bis 19, dadurch gekennzeichnet,
- daß die SMC-Matten in Streifen (12) geschnitten und auf Spulen bzw. Rollen
(8) aufgewickelt werden,
- daß die Streifen (12) abgelängt und in rechteckigen Zuschnittslagen (11) an-
geordnet werden und
- daß die einzelnen Zuschnittslagen (11) auf einem Drehteller (14) zu einem
Stapel (19) geschichtet werden.
21. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß der Stapel (19) in
das Werkzeug (Presse) (18) zur Herstellung des Bauteils (16) eingelegt wird
oder aber zur Fixierung durch Vorpressen vorgeformt wird.
22. Verfahren nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, daß die Presse zum
Vorformen eine Negativform des Werkzeugs zum Herstellen des Bauteils (16)
ist.
23. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeich-
net, daß die Streifen (12) auf Spulen mit einem Kerndurchmesser von größer
200 mm und einem Außendurchmesser von größer 500 mm aufgewickelt wer-
den.
24. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeich-
net, daß das SMC fließfähig ist und die Zuschnittsgröße immer kleiner als die
abgewickelte Bauteiloberfläche ist.
25. Bauteil aus faserverstärkten Duroplasten, dadurch gekennzeichnet, daß dieses
Bauteil aus einem SMC gemäß einem der Ansprüche 1 bis 24 hergestellt ist.
26. Bauteil nach Anspruch 25 zur Verwendung als Automobilaußenteil.

Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft ein SMC (Sheet Moulding Compound) zur Herstellung faser-
verstärkter duroplastischer Bauteile bestehend aus einer Harzmatrix (2) mit einer
Faserverstärkung mit unidirektionalen Fasern (UD-Fasern) (7), die in einer axialen
5 Ausrichtung angeordnet sind, und vorteilhafterweise zusätzlich mit geschnittenen
Fasern (Wirrfasern) (4), die ungerichtet in der Harzmatrix angeordnet sind.

Damit bei niedrigem Flächengewicht eine extrem hohe Festigkeit in multiaxialer
Richtung erreicht ist, wird vorgeschlagen, daß mehrere Lagen SMC mit UD-Fasern
(7) mit voneinander verschiedener axialen Ausrichtung im Bauteil angeordnet sind.

10 (Fig. 1)

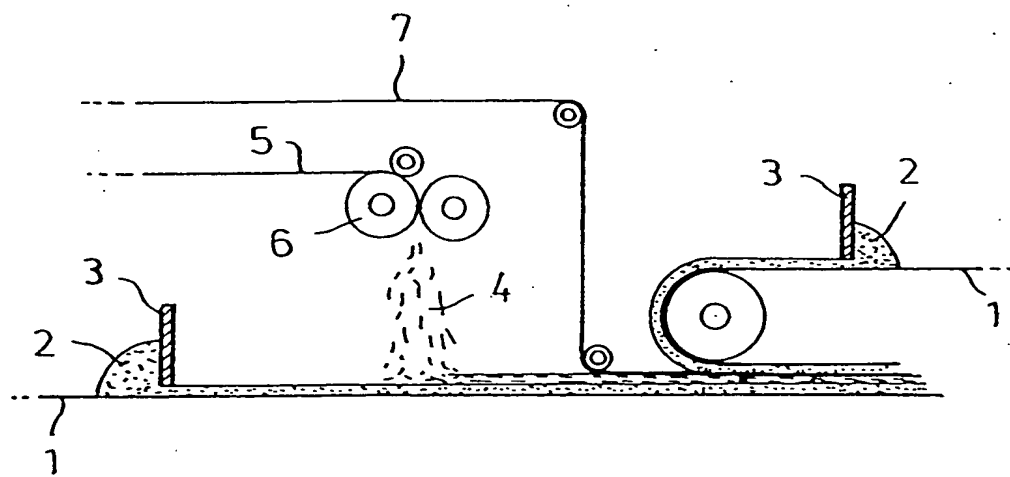


FIG.1

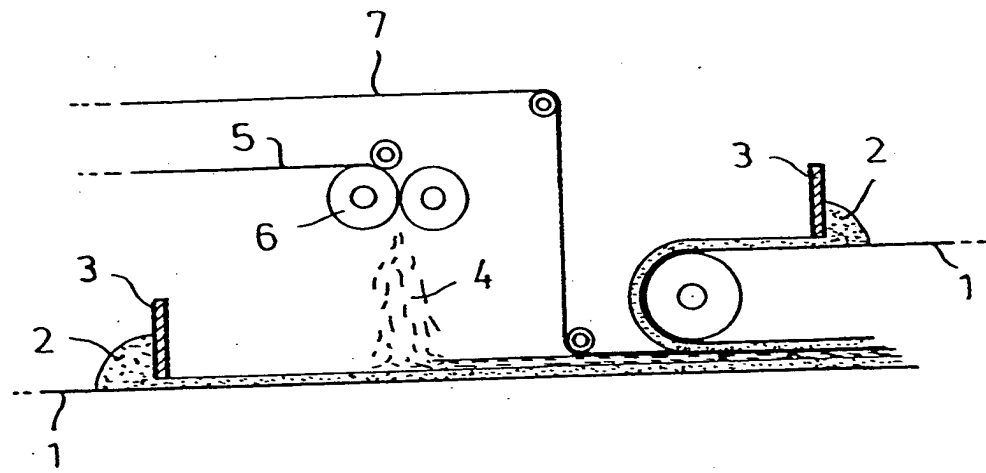


FIG.1

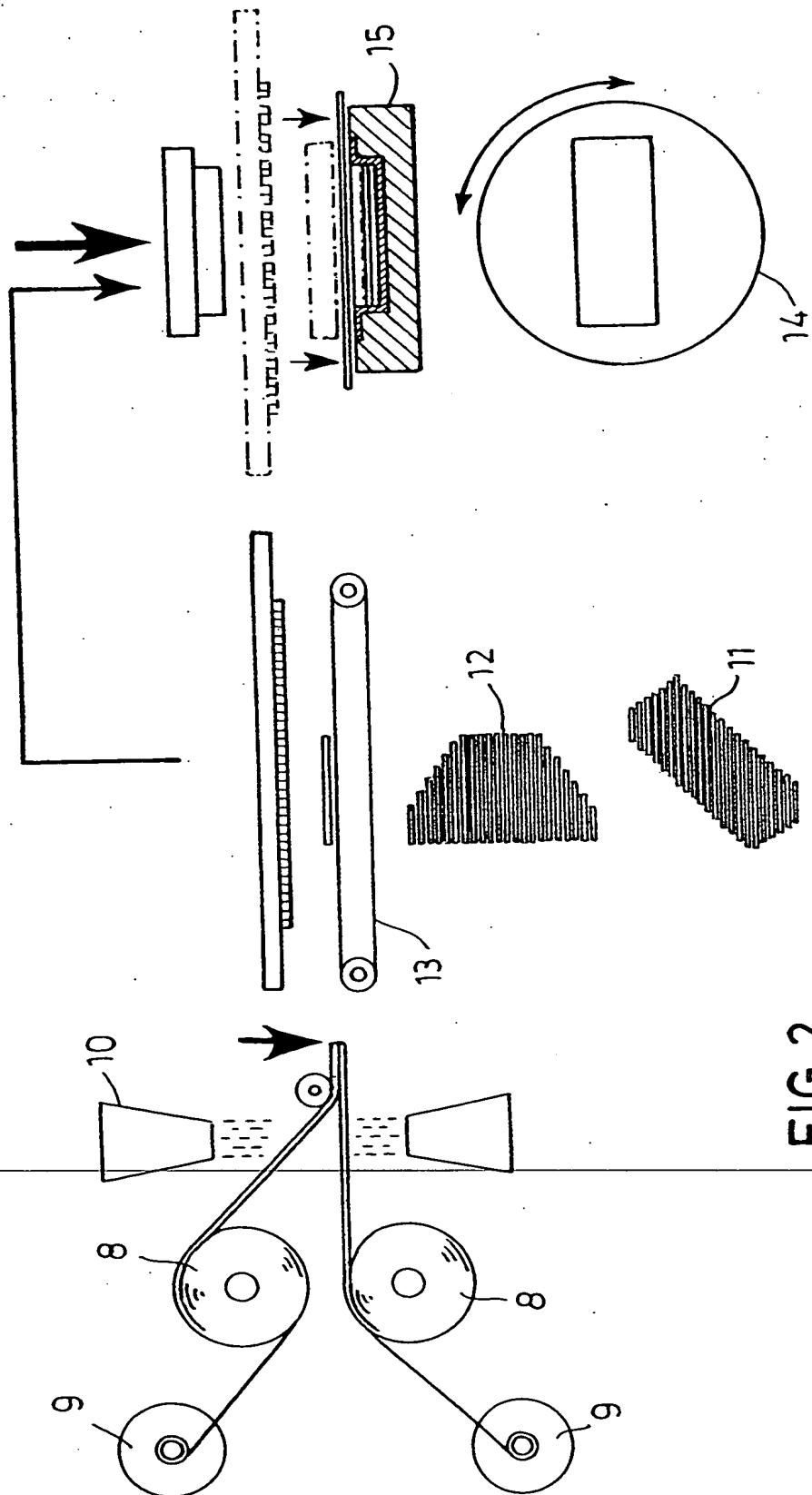


FIG.2

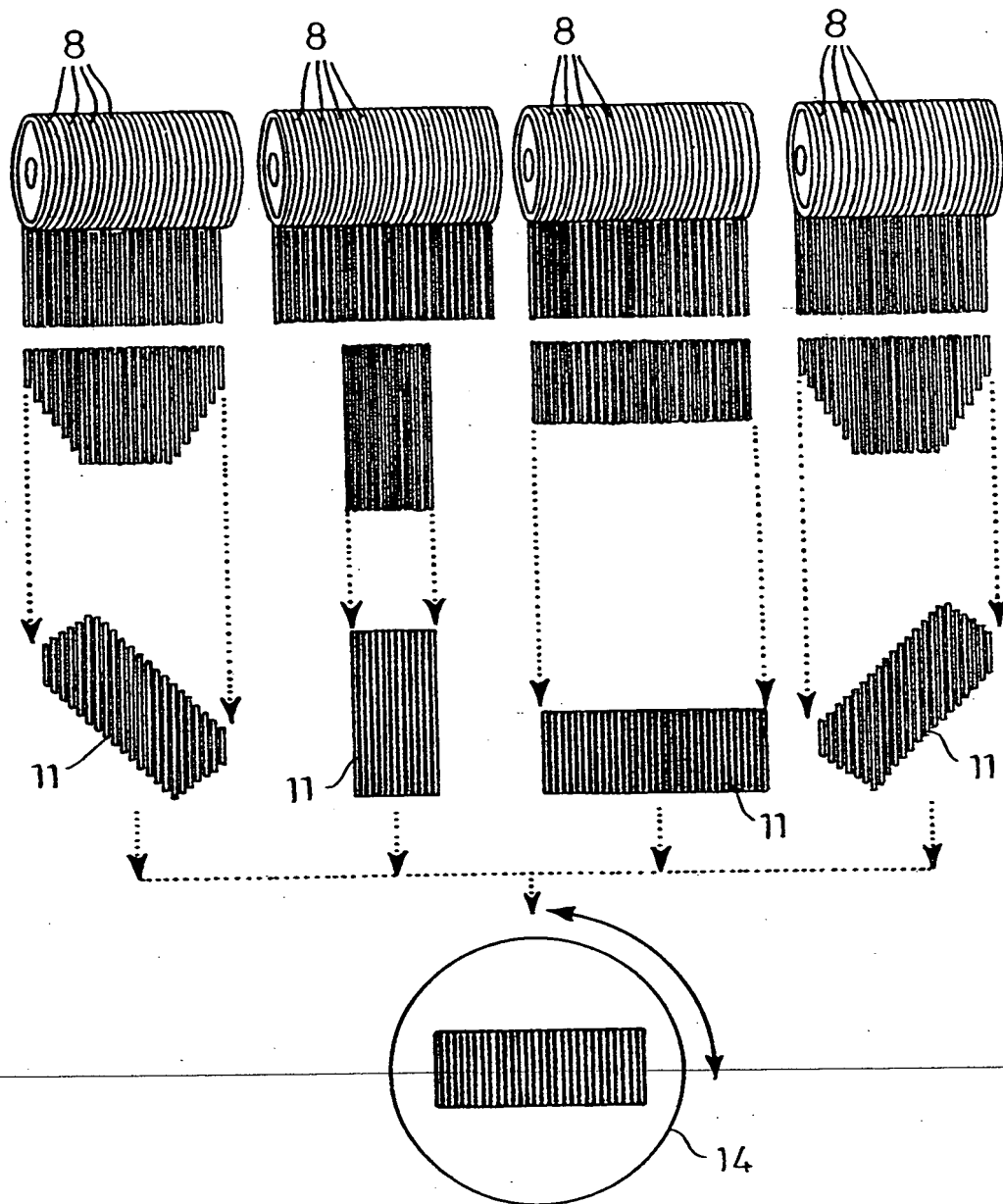


FIG.3

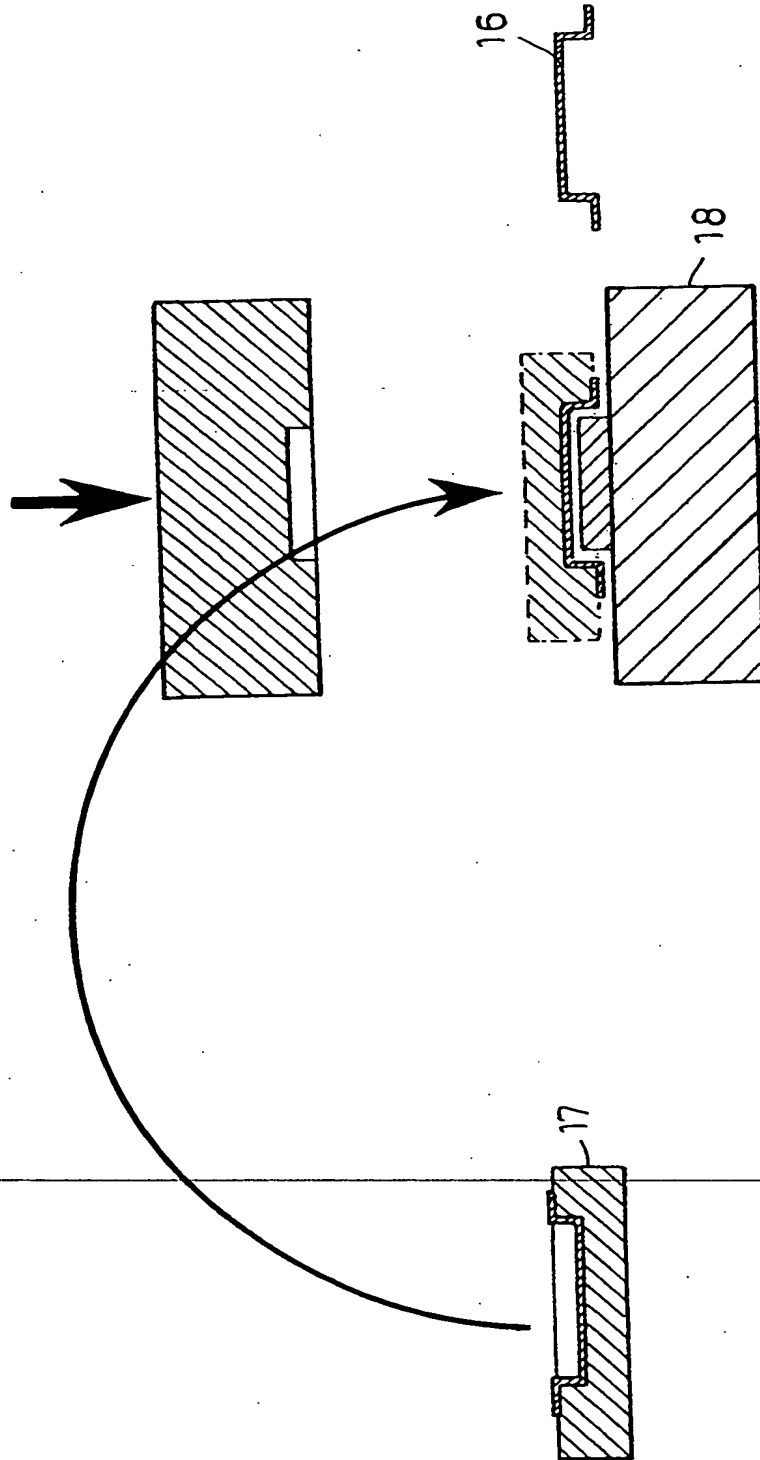


FIG. 4

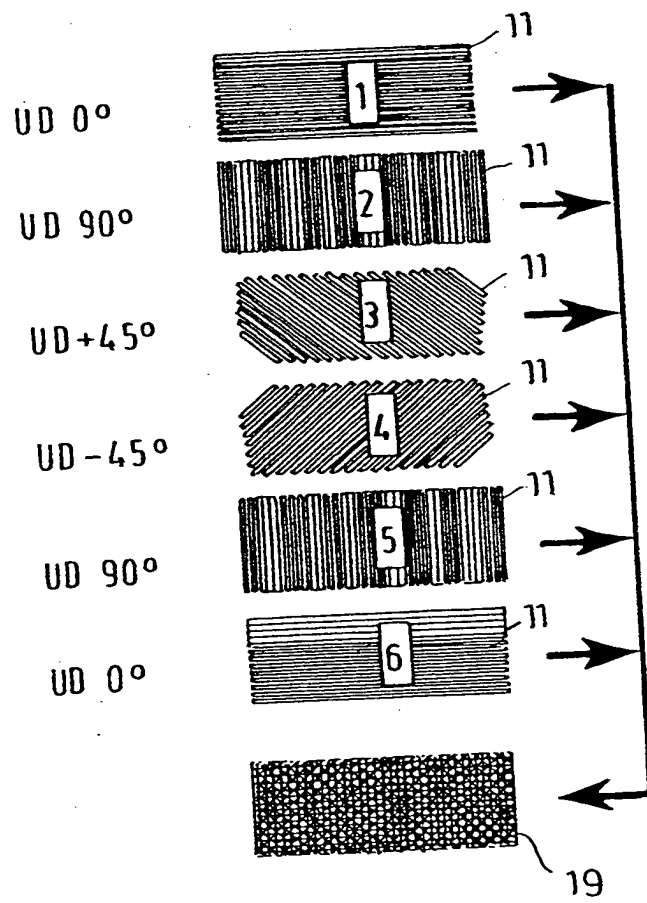
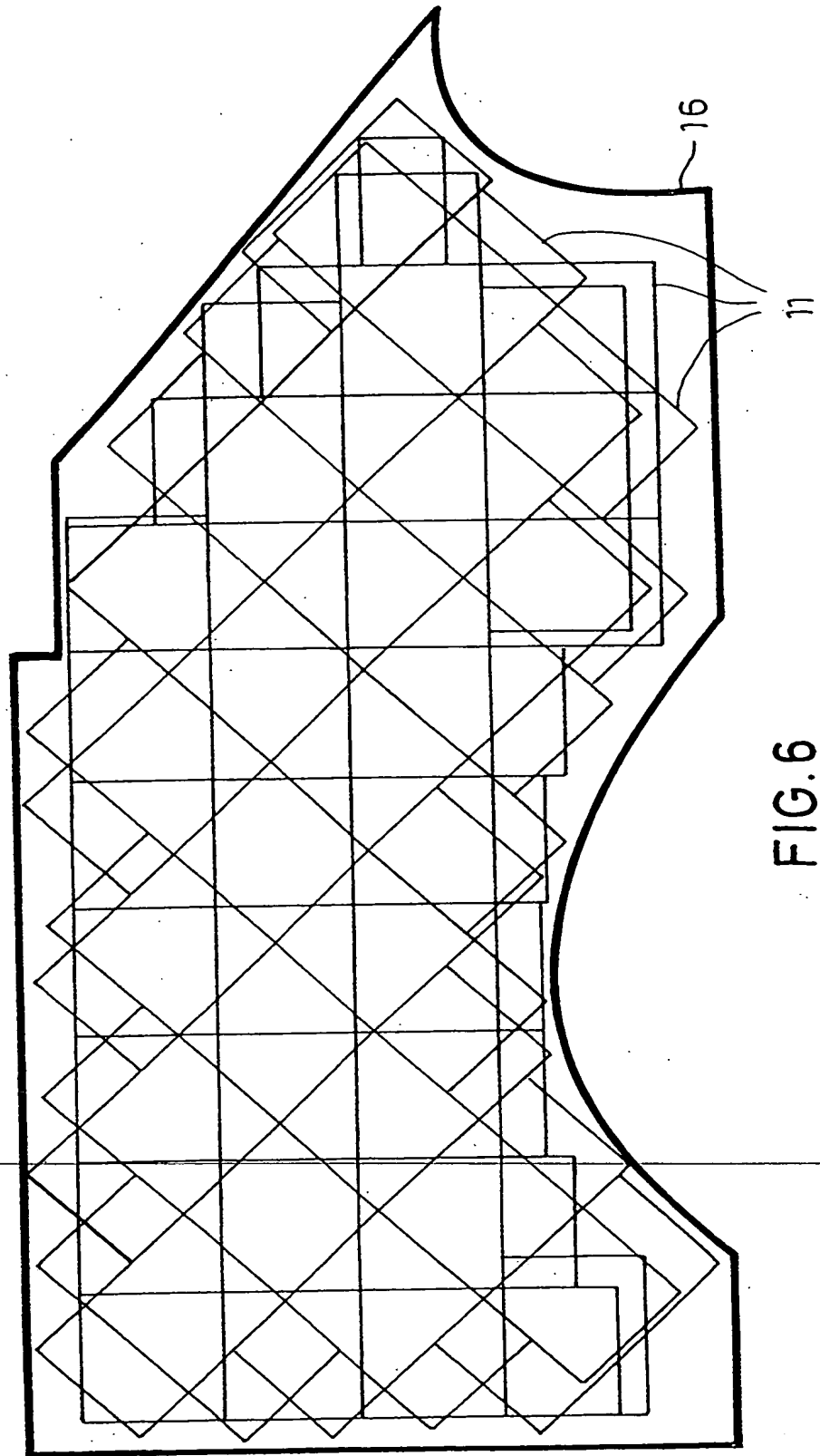


FIG. 5



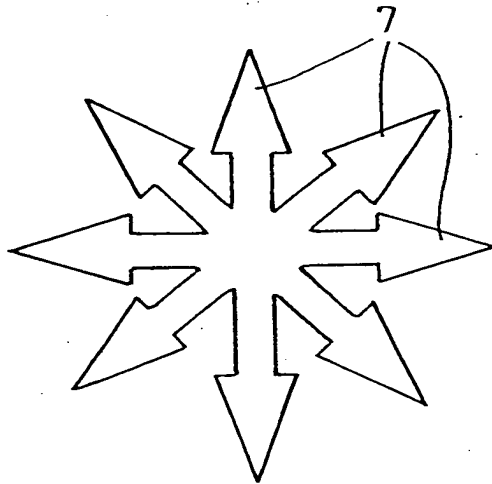


FIG .7